低能高电荷态重离子辐照金刚石制备 NV 色心研究

张磊 [1,2]，牟宏进 [1,2,3]，赵灿 [1]，郭金龙 [1]，付林燕 [1,2]，毛光博 [1,2,3]，杜关祥 [4†]，杜广华 [1,2†]

(1.中国科学院近代物理研究所，兰州 730000；
2.中国科学院大学，北京 100049；
3.兰州大学，兰州 730000；
4.南京邮电大学，南京 210003)

摘要：金刚石中的氮空位(NV)色心因其优异的量子相干性和室温稳定性在量子信息、量子传感等领域具有重要的科学意义和应用价值。本研究利用 2.97 MeV 的 Ar^{11+}高电荷态离子，结合高温退火过程，开展了金刚石 NV 色心的制备研究。研究发现，在 1×10^{14} ions/cm^2 离子注量下，辐照和退火处理显著提升了高温高压金刚石样品中 NV 色心的产额，而 1×10^{15} ions/cm^2 辐照注量会严重破坏金刚石的晶格结构，造成本底 NV 色心的显著降低。结果表明，高电荷态重离子辐照可用于精确调控金刚石中 NV 色心的浓度，退火温度和时长对于提升色心产额有重要作用。本工作还研究了 NV 色心带隙对温度的依赖性以及高电荷态重离子在材料中的电荷交换过程。这些工作为优化离子辐照制备 NV 色心技术提供了实验和理论支撑。

关键词：金刚石；氮空位色心；低能高电荷态重离子

1. 引言

量子科学和量子信息技术正处在迅速发展阶段，基于固态量子比特(qubit)的量子传感应用研究是当前的热点领域[1-2]。在众多物理载体中，基于金刚石的氮空位(Nitrogen Vacancy)色心因其优异的量子相干性和室温下的稳定性而备受关注。NV 色心是金刚石中的点缺陷，由一个替代氮原子和邻近的空位组成，具有C_{3v}对称性。NV 色心可通过激光操控其电子自旋状态，实现量子态的初始化和读出；此外，其对磁场和温度变化的高灵敏度，使其在量子传感领域展示出广阔的应用潜力。NV 色心通常以电负性(NV^-)和电中性(NV^0)两种电荷态存在，对应的零声子线(Zero Phonon Line, ZPL)分别为 637 nm 和 575 nm，

基金项目：国家重大研发计划项目(2021YFA1601400)
作者简介：张磊(1998-)，男（汉），安徽人，硕士研究生，凝聚态物理专业；E-mail: zhangl@impcas.ac.cn
†通信作者：杜关祥，E-mail: duguanxiang@njupt.edu.cn；杜广华，E-mail: gh_du@impcas.ac.cn

二者可通过金刚石表面处理、外加电场、激光等手段实现可控转化[3-5]。NV 色心（下文无特别说明均指 NV^-色心）是较为理想的两能级系统，具有自旋稳定可控、偏振特性和单光子特性等优良性质，其基态 $^3A_2$ 与激发态 ^3E 均为电子自旋三重态，此外还有两个亚稳态 $^1A_1$ 和 ^1E，为电子自旋单态[6]。室温下基态和激发态的自旋子能级之间分别存在 2.87 GHz 和 1.42 GHz 的零场劈裂[6]。NV 色心的光探测磁共振(ODMR)技术在量子精密测量等领域具有更广泛的应用[7]。

NV 色心结构可由化学气相沉积(CVD)合成金刚石的过程中引入氮原子掺杂获得，或者是金刚石晶体经由离子注入、辐射损伤和退火过程获得。目前，NV 色心的制备主要依赖 CVD 生长、离子注入、电子束和飞秒激光辐照等技术。在 CVD 金刚石生长过程中，通过在混合气体源中添加氮气源来制备 NV 色心[8]。该方法制备的 NV 色心有浓度可控和基态电子自旋相干寿命长的优点，但形成位置不可控，需结合电子束等辐照技术进一步研究[8]。电子束及飞秒激光辐照也可在金刚石中引入缺陷，结合高温退火产生 NV 色心[9-10]，这两种方法具有较高的空间分辨率，但产生空位等缺陷的密度较低，导致较低的色心产率。氮离子注入技术是制备金刚石 NV 色心的一种常用方法，有很高的定位精度，可以可控地创建单个 NV 色心[11-12]。然而在氮离子注入金刚石的过程中会不可避免地造成金刚石的晶格损伤，产生局部应力应变及相关缺陷，导致 NV 色心结构破坏，自旋相干时间减弱和光学上的特征峰展宽。高温退火可以恢复部分受损的晶格，因此常作为离子注入的后处理技术。此外，高压高温(HPHT)方法制备的金刚石相比 CVD 法，有较高的氮含量，因此通常呈黄色。本文中，结合离子辐照技术和高温退火过程，在不引入额外氮原子的情况下，利用重离子制造原子缺陷的优异性能，有望提升 NV 色心产率。重离子束可以精确地控制辐照区域，具有种类多样、能量可调及辐照时间短等优势，可以大规模制备金刚石体内以及浅表层 NV 色心[13-14]。

高电荷态离子在样品的 nm 浅表层可以通过高势能和电离能损产生大量损伤，从而可有效导致色心的高额产生。缺陷的产额和深度分布与重离子的种类、能量和注量等参数紧密相关，这对于调控 NV 色心的密度和分布，以及优化其光学及电学性质至关重要。高能重离子可沿其径迹产生大量的缺陷[15-16]，但由于射程岐离难以在纳米尺度做到深度分布的精确控制。低能重离子在材料中的注入位置精度高，可用于实现可控的 NV 色心阵列或单个 NV 色心的制备。本文基于低能高电荷态离子辐照法，通过清洗、辐照、退火和酸洗等一系列实验流程，初步研究了低能高电荷态重离子制备 NV 色心的实验参数和理论模型。

2. 材料与方法

2.1 金刚石样品处理

实验样品为高温高压法(HPHT)制备的高掺杂氮浓度的金刚石（深圳市易克超硬材料商行，型号 D11-3010），尺寸为 2.5×2.5×1 mm^3，六面晶面为(100)，表面粗糙度 15 nm，氮含量在 150-200 ppm 之间（如图 1(a)所示）。

金刚石样品首先在超声清洗机中使用丙酮进行 5 min 的清洗，以去除表面污渍。之后进行低能高电荷态重离子辐照实验，该实验在中国科学院近代物理研究所的 320 kV 低能重离子综合研究平台完成。在金刚石样品前添加一个硅掩模版，用以区分辐照和未辐照区域。硅掩模版的尺寸为 8×8 mm^2，厚 500 μm，中间是直径 5 mm，厚度 100 μm 的圆形区域。掩膜的周期为 50 μm，即每个栅格大小为 25×25 $μm^2$（如图 1(b)所示）。使用能量为 2.97 MeV 的 Ar^{11+}离子对 3 个金刚石样品在室温下进行辐照，如图 1(c)所示，注量分别为 1×10^{13} ions/cm^2、1×10^{14} ions/cm^2 和 1×10^{15} ions/cm^2（样品编号分别为#1E13、#1E14、#1E15）。辐照后，金刚石样品进行高温退火处理，初始升温速度为 10 ℃/min，达到 550 ℃后保持 20 min，继续加热至 800 ℃并保持 1 h，真空度为 5.4×10^{-4} Pa，然后经 3 h 自然冷却至室温后取出样品。退火完成后对金刚石样品进行混酸酸洗，使用体积比 1:1:1 的浓硫酸、浓硝酸和高氯酸混合液，加热至 300 ℃以增强其氧化性，去除样品表面污渍和无定形碳，处理时长 3 h。酸洗之后用丙酮清洗去除表面残留的酸液。

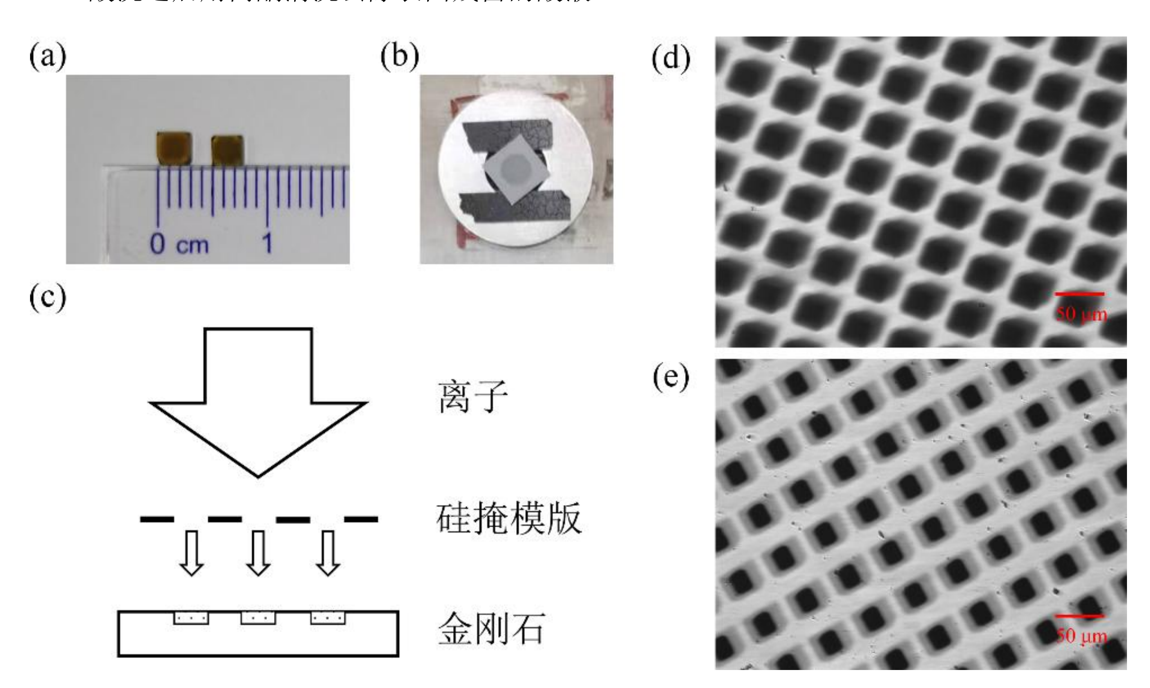


图 1 重离子辐照实验示意图（在线彩图）

(a)金刚石样品；(b)硅掩模版；(c)辐照示意图；(d)辐照后的样品表面（#1E15）；(e)辐照退火后的样品表面（#1E15）。

2.2 金刚石样品的表征

在样品退火前后均对金刚石样品进行了表征和测量。首先，使用倒置荧光显微镜(Zeiss, Axio Observer Z1 Microscope)对金刚石表面形貌进行观察，使用的光源为白光。然后利用显微共聚焦拉曼光谱仪(HORIBA, LabRam HR800)测量了金刚石样品辐照前后的拉曼光谱，激发光波长设置为 532 nm，积分时间为 0.1 s，物镜为 20 倍长焦物镜，激光光斑大小约为 5 μm。使用激光共聚焦显微镜(Leica, Stellaris 5)对金刚石样品表面进行了荧光观测，激发光波长为 532 nm，接收的荧光范围为 545~683 nm。

3. 结果

3.1 金刚石样品的结构变化与荧光特征

在金刚石样品表面放置硅掩模版并使用能量为 2.97 MeV 的 Ar^{11+}离子进行辐照。利用 SRIM 程序计算得到 Ar^{11+}离子在硅中的射程约为 1.6 μm[17]，在金刚石中的射程约为 1.1 μm[17]。因此掩模版栅格可以阻挡 Ar^{11+}离子，同时在掩模版开口区域离子束可以透过并轰击到下方的金刚石样品。在 1×10^{13} ions/cm^2 低注量辐照后，白光显微成像未观测到金刚石样品的表面变化。但是，在 1×10^{15} ions/cm^2 高注量辐照后，表面白光显微观察显示样品表面呈现出栅格结构的明暗变化，暗区为辐照导致，且暗区范围超出了预期的栅格尺寸（如图 1(d)所示）。实验中硅掩膜版距离金刚石样品表面 1 mm，具有 10 mrad 发散角的离子在样品表面偏移距离可达到 10 μm。我们推测这种边缘暗区损伤是由离子束高斯型分布叠加电磁扫描所产生的边缘离子辐照导致，在这部分区域离子注量低于主辐照区域。在对辐照过的金刚石样品进行高温退火处理后，显微观察显示黑色损伤区域显著减小，且出现了灰色的过渡区（如图 1(e)所示）。结果表明高温退火过程可以修复部分金刚石晶格的辐照损伤，在栅格区域之外，由于发散角较大的离子数量较少，因此损伤恢复的程度较高；在灰色过渡区域，辐照损伤恢复的程度有所下降；而在辐照的中心区域，金刚石晶格的损伤最大，因此恢复的程度最低。退火过程使得金刚石中的原子获得足够的能量以重组和修复部分断裂的晶格结构，在离子辐照较少的区域，金刚石的晶格结构可以恢复，在辐照的中心区域，退火过程只能部分恢复辐照造成的晶格损伤。

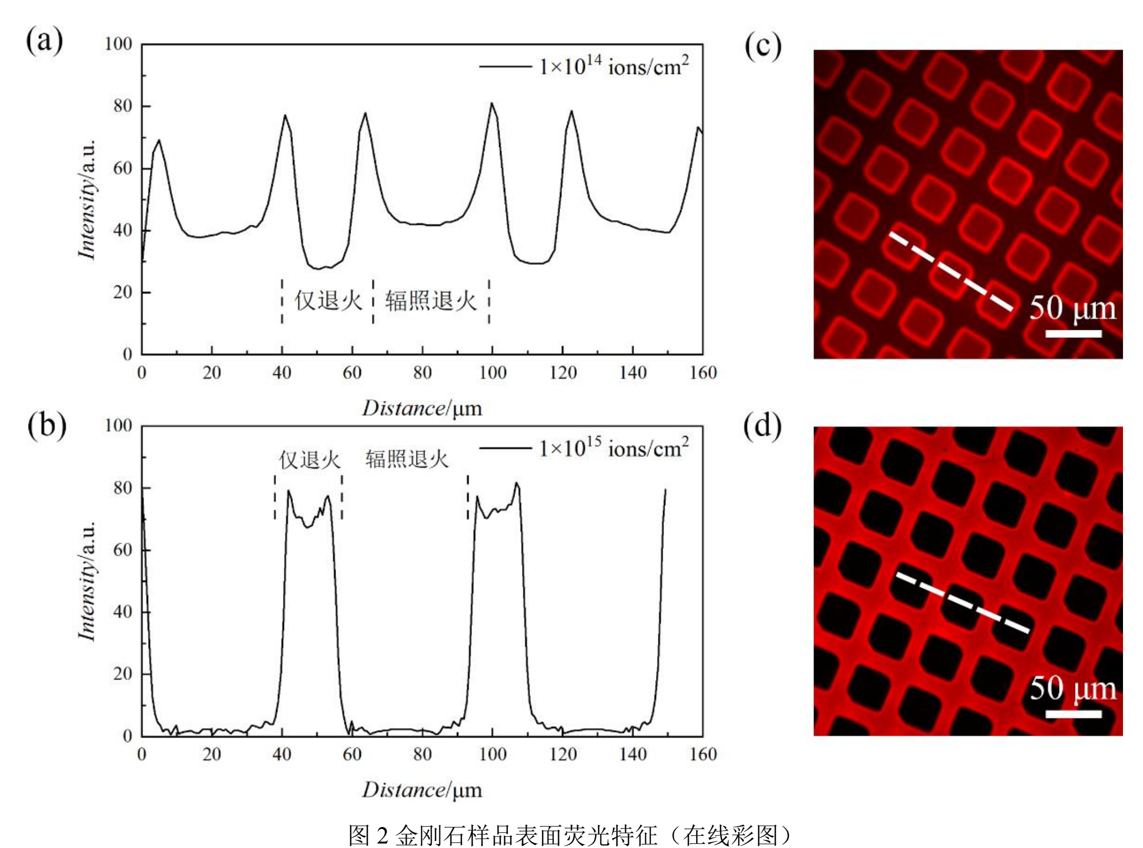


图 2 金刚石样品表面荧光特征（在线彩图）

(a)(c)1×10^{14} ions/cm^2；(b)(d) 1×10^{15} ions/cm^2。沿白色虚线取样。

实验测量了金刚石样品表面的荧光分布，并做了定量表征（如图 2 所示）。金刚石样品在 1×10^{13} ions/cm^2 低注量辐照后，未观测到显微荧光变化。在 1×10^{14} ions/cm^2 离子辐照注量时，同一片金刚石样品中辐照退火区域的中心部分，其荧光强度高于仅退火区域。在两个区域之间存在狭窄的过渡区，其荧光强度最高。而在 1×10^{15} ions/cm^2 离子注量辐照下，呈现出与较低注量相反的荧光分布。辐照退火区域的荧光强度显著低于同一片样品中的仅退火区域，且没有狭窄的过渡区。荧光观测的结果表明，在 1×10^{14} ions/cm^2 的离子辐照注量下，提高了金刚石中 NV 色心的产额，而在 1×10^{15} ions/cm^2 的离子辐照注量下，NV 色心的产额显著下降。过高的离子辐照注量会破坏金刚石的晶格结构以及 NV 色心结构，而适当的离子注量辐照，结合高温退火过程，可以有效地制备 NV 色心。

3.2 金刚石样品的拉曼光谱

实验测量了辐照中心区域和未辐照区域的拉曼光谱。初始金刚石样品在 572 nm 处展现出典型的拉曼峰，经过退火处理后，未经辐照的样品在 575 nm、637 nm 的 NV^0、NV^-峰处有明显的增强，同时在测量波段内的背景荧光也显著增大。HPHT 金刚石样品中含有大量的替代氮原子和空位，在高温退火的作用下，缺陷的迁移使得氮原子和空位组成 NV 色心结构。通过退火过程直接形成的 NV 色心结构具有一定的随机性，其在金刚石样品中的位

置不可控，无法满足量子传感的实际需求。在 1×10^{14} ions/cm^2 注量的 Ar^{11+}离子辐照下，未退火的金刚石样品，其拉曼峰强度显著下降，背景荧光也有一定的减弱，表明离子注入对金刚石晶格结构造成了破坏。随后进行退火处理，出现了高强度的 NV^0、NV^-荧光信号，高于样品中仅退火的区域（如图 3(a)所示）。因此在辐照区域，样品有高强度的荧光发射，而被硅掩模版阻挡的未经辐照的区域荧光强度较低（如图 2(c)所示）。通过合适注量的离子辐照技术，结合高温退火，可以在一定范围内制备大量色心。而以 1×10^{15} ions/cm^2 较高注量辐照，样品的 NV^0、NV^-荧光信号大幅减弱，低于样品中仅退火的区域（如图 3(b)所示）。当离子注量过高时，金刚石晶格结构被严重破坏，尽管制造了更多的空位等点缺陷，但退火过程难以恢复损伤的晶格结构，导致存在于该结构中的 NV 色心产额也大幅下降，因此辐照区域的荧光弱于未辐照区域，呈现出与低注量辐照时相反的荧光分布（如图 2(d)所示）。

离子辐照可以产生大量空位、间隙原子等缺陷，造成金刚石晶格结构的破坏。随后的退火过程可以加速缺陷的迁移、复合等过程，当氮原子在其周围捕获一个空位时有一定几率形成 NV 色心结构。合适的辐照注量可以提升 NV 色心的产额，而过高的辐照注量则会严重破坏晶格结构，即使制造了大量的缺陷，但是无法在稳定的金刚石结构内产生色心，导致了 NV 色心产额的下降。退火的温度和时长也是影响色心产额的重要因素之一，与离子辐照注量相适应，选择适当的退火温度和时长对于提升色心产额有重要作用。

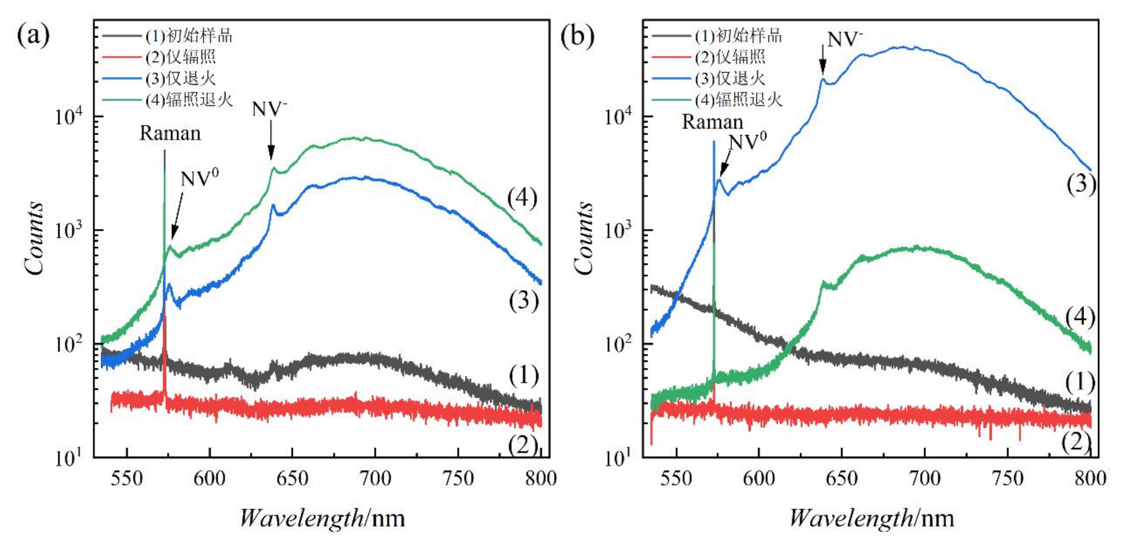


图 3 金刚石样品的拉曼光谱（在线彩图）

(a) 1×10^{14} ions/cm^{2}注量；(b) 1×10^{15} ions/cm^{2}注量。

4. 重离子辐照金刚石的机理探讨

4.1 重离子辐照制备色心的机理

为了探究离子辐照造成的效应，将图 3(a)中的曲线 4 和 3 的荧光强度相除，得到图 4(a)

中比值的分布。金刚石拉曼峰的荧光比值小于 1，表明离子辐照大量破坏了金刚石的晶格结构，即便在较低注量辐照的情况下，退火过程也没有完全恢复晶格结构，后续实验可以适当提高退火温度和时长，探究晶格损伤恢复的最佳退火温度及时长。NV^-色心的 ZPL 为 637 nm，本实验中测得实际的 ZPL 为 638.7 nm（如图 3(a)所示），表现出一定量的红移。金刚石中呈电负性的 NV^-色心，其 ZPL 的位置与温度、金刚石局部应力和应变以及周围缺陷和杂质等因素紧密相关，而这些因素中，电子-声子的相互作用有着重要影响。在固体中，电子的移动会扰动周围的离子，产生晶格振动。同样的，晶格振动也会影响电子的能量状态和运动。当 NV^-色心吸收一个光子时，电子从基态跃迁到激发态，若光子能量等于能级差（ZPL 的能量），则不伴随声子的吸收；否则电子可以吸收额外的声子，以补偿能量差。一旦电子处于激发态，其可以在激发态中不同的振动亚能级间弛豫，在弛豫到激发态最低振动亚能级时会发射声子，此时通常不会有光子的产生。从激发态最低振动亚能级回落到基态的某个振动能级，这个过程可以不伴随声子，即 ZPL；也可以伴随一个或多个声子，即回落到某个振动能级上，产生声子边带，然后通过发射声子弛豫到基态的最低能级。这个过程解释了光谱中 ZPL 和宽阔声子边带的产生，而声子，即晶格振动简正模的能量量子，与温度紧密相关。随着温度的升高，晶格热膨胀引起晶格常数的变化，声子热激发导致的电子-声子相互作用增强均会导致 NV^-色心 ZPL 的偏移。O’Donnell 等人提出用以下方程代替传统的 Varshni 公式，来描述半导体带隙的温度依赖性[18]：

$$\begin{aligned} E_g(T) &= E_g(0) - S\langle\hbar\omega\rangle\left[\coth\left(\langle\hbar\omega\rangle/2k_B T\right) - 1\right] \\ &= E_g(0) - 2S\langle\hbar\omega\rangle\frac{1}{\exp\left(\langle\hbar\omega\rangle/k_B T\right) - 1} \end{aligned} \#(1)$$

其中$E_g(T)$是温度 T 情况下的带隙，S 是无量纲的描述电子-声子耦合强度的 Huang-Rhys 因子，$\langle\hbar\omega\rangle$是平均声子能量，$k_B$是玻尔兹曼常数。从表达式可以看出，我们需要获取 NV^-色心吸收声子的平均能量。在 ZPL 之后有一个大范围的荧光区域，即声子边带，其中有 662.1 nm 和 686.9 nm 的两个荧光峰。将光的波长转换为能量后可知，本实验中测得 NV^-色心的带隙为 1.9414 eV，声子边带里两个荧光峰处的带隙分别为 1.8728 eV 和 1.8052 eV，与零声子吸收时的带隙分别相差 68.6 meV 和 136.2 meV，表明分别吸收了一个和两个声子来完成能级跃迁。由此可得 NV^-色心吸收声子的平均能量为 68.3 meV。本实验的温度为 293 K，测得该温度下 NV^-色心的带隙为 1.9414 eV，而 0 K 时的带隙为 1.9466 eV，带入公式(1)中可得 S=0.53066，于是得到了完整的带隙随温度变化的公式。Xu 等人利用修正的 Varshni 模型也得到了 HPHT 金刚石中 NV^-色心带隙随温度的变化关系[19]，二者的对比见图

4(b)，相对差别小于 0.14%。随着温度的升高，NV^-色心的带隙逐渐减小。温度升高，会引起晶格常数的变化，进而影响到电子的能带结构，导致带隙能量的变化；晶体中声子的数量增加导致电子波函数的变化，从而影响电子的能量状态，另一方面增强的电子-声子相互作用也导致了能级的展宽和移动。本实验的结果与 Xu 等人的差异主要来自于金刚石样品本身，不同金刚石之间的局部应力应变、色心周围缺陷及杂质分布等有所不同；同时本实验拟合数据较少，也是造成差异的原因之一。

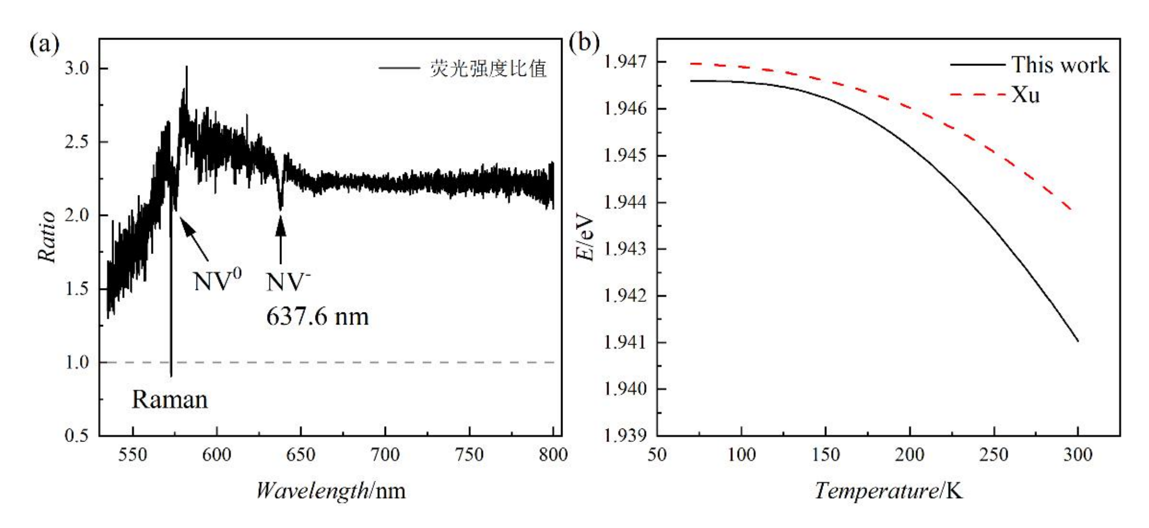


图 4 辐照退火与仅退火区域荧光强度比值的分布以及 HPHT 金刚石中NV^-色心带隙随温度的变化

在同一片金刚石样品中，注量 1×10^{14} ions/cm^2 辐照退火区域的荧光强度，相对于仅退火区域的荧光强度，总体增强为 2.2 倍，而 NV^0 及 NV^-色心的荧光强度均增强为 2 倍（如图 4(a)所示），表明离子辐照是提升色心产额的有效手段。NV^0 及 NV^-色心的长波区域有着宽阔的声子边带，二者声子边带的荧光强度得到了更大的增强，表明离子辐照导致的晶格常数、缺陷分布以及局部应力应变的变化引起了电子-声子相互作用的增强，有更多的声子参与了 NV 色心的受激发射过程。

4.2 低能高电荷态重离子与金刚石相互作用的电荷交换过程

重离子在金刚石中的输运除了与能量、离子种类相关，还与其电荷态紧密联系。进一步的，利用 Charge Changing Cross Sections(CCCS)[20-21]代码计算了氩离子与金刚石相互作用的电荷态的变化。随着氩离子能量的升高，其平均平衡电荷态从 40 keV 的 0.4 增加至 2 GeV 的 18.0，成为裸核（如图 5(a)所示）。高能重离子在材料中的电荷交换以电子丢失为主，相同入射电荷态的情况下，能量越高，其平均平衡电荷态越高，表明高能的重离子丢失的电子更多。能量 2.97 MeV 的 Ar^{11+}离子在金刚石中的平均平衡电荷态为 4.86，平衡电荷态中以电荷态 5 占据绝大部分，约 41.9%，电荷态 4、6 则较少，约 25.9%和 17.7%（如图 5(b)

所示）。本实验使用的是高电荷态离子，其平均平衡电荷态远低于入射时的电荷态，表明离子在金刚石样品中经历了大量的电荷交换过程，并以电子俘获过程为主。基于此，进一步计算了该能量下离子在材料中的单双电子俘获、丢失截面。当离子的电荷态低于平均平衡电荷态时，以电子丢失过程为主；高于平均平衡电荷态时，以电子俘获过程为主。电荷态由低到高变化时，电子俘获过程的截面逐渐增大，电子丢失过程的截面逐渐减小，二者在平均平衡电荷态附近的值相等（如图 5(b)所示）。这表明一定能量的离子入射至材料中，低电荷态时会丢失电子，而在过高的电荷态后会俘获电子，最终在平衡电荷态附近达到动态平衡。对比单双电子俘获、丢失过程的截面，单电子过程远大于双电子过程的截面，而三电子等多电子过程的截面更低，表明离子在材料中的电荷交换过程以单电子过程为主。

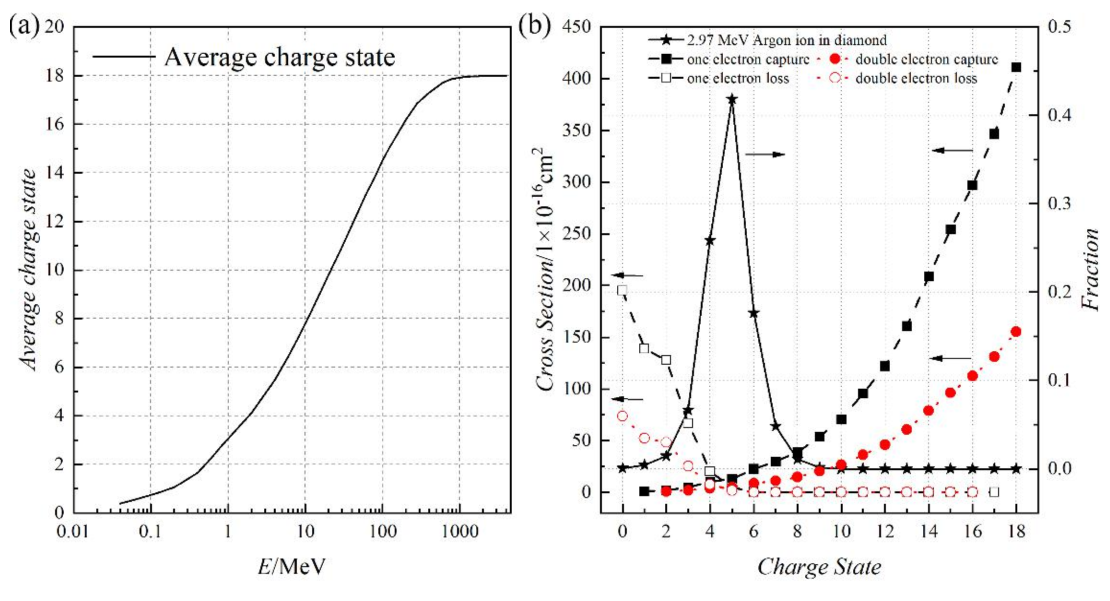


图 5 氩离子在金刚石中的电荷交换（在线彩图）

(a) 氩离子在金刚石中平均平衡电荷态随入射能量的变化；(b) 能量 2.97 MeV 的氩离子在金刚石中的平衡电荷态分布及单双电子过程的俘获、丢失截面。

对于高电荷态重离子，在低能的情况下也可在材料表面制造微纳结构。相对于以原子或者单电荷态离子入射，高电荷态离子本身具有极高的势能，是制造表面结构的主要因素，而其动能则决定了离子的穿透深度[22-23]。低能高电荷态重离子辐照金刚石的表面效应仍有待进一步研究。

5. 总结与展望

金刚石 NV 色心是量子计算、量子传感等领域的重要物理载体。本文利用低能高电荷态离子辐照金刚石来制备 NV 色心，研究了离子辐照及退火过程对金刚石样品表面形貌、拉曼光谱的影响，分析了离子在材料中的电荷交换过程、NV 色心带隙对温度的依赖性以

及重离子精确制备NV色心的可能性。结果表明，重离子是精准制备NV色心的有效手段。过高的辐照注量会破坏晶格以及色心的结构，适当选择离子的种类、能量及辐照注量可以提升NV色心的产额；高电荷态重离子在材料中的电荷交换过程以单电子过程为主，能量越高，重离子的平衡电荷态越接近裸核；而温度的升高，引起电子-声子相互作用的变化，导致了NV色心带隙的减小。未来，积极发展离子微米束、纳米束装置对精准制备色心有着重要作用，开展不同离子的辐照实验可以提供坚实的基础数据，结合相应的分子动力学、蒙特卡洛及密度泛函理论等计算方法，参考现有半导体工艺技术，将有助于理解离子与材料的相互作用并大规模精准制备色心结构。

参考文献

[1] HO K O, SHEN Y, PANG Y Y, et al. Functional Diamond. 2021, 1(1): 160-173. doi: 10.1080/26941112.2021.1964926

[2] PEZZAGNA S and MEIJER J. Applied Physics Reviews. 2021, 8(1): 011308. doi: 10.1063/5.0007444

[3] RONDIN L, DANTELLE G, SLABLAB A, et al. Physical Review B. 2010, 82(11): 115449. doi: 10.1103/PhysRevB.82.115449

[4] CHEN X D, ZOU C L, SUN F W, et al. Applied Physics Letters. 2013, 103(1): 013112. doi: 10.1063/1.4813120

[5] DOI Y, MAKINO T, KATO H, et al. Physical Review X. 2014, 4(1): 011057. doi: 10.1103/PhysRevX.4.011057

[6] DOHERTY M W, MANSON N B, DELANEY P, et al. Physics Reports. 2013, 528(1): 1-45. doi: 10.1016/j.physrep.2013.02.001

[7] DU J, SHI F, KONG X, et al. Reviews of Modern Physics. 2024, 96(2): 025001. doi: 10.1103/RevModPhys.96.025001

[8] NGAMBOU M W N, PELLET-MARY C, BRINZA O, et al. Diamond and Related Materials. 2022, 123: 108884. doi: 10.1016/j.diamond.2022.108884

[9] CHEN Y C, SALTER P S, KNAUER S, et al. Nature Photonics. 2017, 11(2): 77-80. doi: 10.1038/nphoton.2016.234

[10] LI C X, ZHANG Q Y, ZHOU N, et al. Diamond and Related Materials. 2023, 132: 109623. doi: 10.1016/j.diamond.2022.109623

[11] RABEAU J R, REICHART P, TAMANYAN G, et al. Applied Physics Letters. 2006, 88(2): 023113. doi: 10.1063/1.2158700

[12] JELEZKO F and WRACHTRUP J. physica status solidi (a). 2006, 203(13): 3207-3225. doi: 10.1002/pssa.200671403

[13] SCHWARTZ J, ALONI S, OGLETREE D F, et al. Journal of Applied Physics. 2014, 116(21): 214107. doi: 10.1063/1.4903075

[14] HE J, JIA Y W, TU J P, et al. Acta Physica Sinica. 2022, 71(18): 188102-1-188102-8. doi: 10.7498/aps.71.20220794

[15] ONODA S, HARUYAMA M, TERAJI T, et al. physica status solidi (a). 2015, 212(11): 2641-2644. doi: 10.1002/pssa.201532219

[16] ONODA S, TATSUMI K, HARUYAMA M, et al. physica status solidi (a). 2017, 214(11): 1700160. doi: 10.1002/pssa.201700160

[17] ZIEGLER J F, ZIEGLER M D and BIERSACK J P. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2010, 268(11): 1818-1823. doi: 10.1016/j.nimb.2010.02.091

[18] O'DONNELL K P and CHEN X. Applied Physics Letters. 1991, 58(25): 2924-2926. doi: 10.1063/1.104723

[19] DONG B, SHI C, XU Z, et al. Diamond and Related Materials. 2021, 116: 108389. doi: 10.1016/j.diamond.2021.108389

[20] NOVIKOV N V. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2021, 506: 1-7. doi: 10.1016/j.nimb.2021.09.002

[21] NOVIKOV N V and TEPLOVA Y A. Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques. 2021, 15(2): 247-258. doi: 10.1134/S1027451021020105

[22] EL-SAID A S, MEISSL W, SIMON M C, et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 2007, 258(1): 167-171. doi: 10.1016/j.nimb.2006.12.142

[23] AUMAYR F, FACSKO S, EL-SAID A S, et al. Journal of Physics: Condensed Matter. 2011, 23(39): 393001. doi: 10.1088/0953-8984/23/39/393001

Production of Nitrogen-Vacancy Color Centers in Diamond Induced by Low Energy Highly Charged Heavy Ion

ZHANG Lei[1,2], MOU Hongjin[1,2,3], ZHAO Can[1], GUO Jinlong[1], MAO Guangbo[1,2,3], FU Linyan[1,2], DU Guanxiang[4†], DU Guanghua[1,2†]

(1. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

3. Lanzhou University, Lanzhou 730000, China;

4. Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210003, China)

Abstract: The nitrogen vacancy (NV) color center in diamond is of great significance in quantum information and quantum sensing because of its excellent quantum coherence quality and stability at room temperature. In this work, the production of NV color center in diamond was investigated by 2.97 MeV Ar^{11+} highly charged heavy ion irradition combined with the high temperature annealing process. It is found that the yield of NV color center in diamond samples was significantly increased after the irradiation with a fluence of 1×10^{14} ions⁄cm^2 and annealing. However, at a higher fluence of 1×10^{15} ions⁄cm^2, the irradiation seriously destroyed the lattice structure of the diamond, resulting in a significant decrease of the NV color center background. The results show that the concentration of NV color centers in diamond can be precisely controlled by highly charged ion irradiation, and the annealing temperature and duration also play an important role in regulating the color center yield. Furthermore, the dependence of the NV color center band gap on temperature and the charge exchange process of highly charged heavy ions in the material were also studied. These works provide experimental and theoretical support for the optimization of ion irradiation technology for the production of color centers in diamond.

Key words: diamond; nitrogen-vacancy color center; low energy highly charged heavy ion

Foundation item: National Key R&D Program of China(2021YFA1601400)

† **Corresponding author:** DU Guanxiang, E-mail: duguanxiang@njupt.edu.cn; DU Guanghua, E-mail: gh_du@impcas.ac.cn